Annex (Amended sheets of the Specification & Claims)

(1) (Amendment 1)

Examples of natural fibers to be used for sheet formation include: wood fibers such as softwood pulp and hardwood pulp; plant fibers such as pulps of cotton yarn, sugarcane, bamboo, and hemp; and animal fibers such as wool and silk.

Further, examples of the above-mentioned synthetic fibers include fibered polyethylene, polypropylene, polyester, polyamide, and cellulose acetate.

Among base papers obtained from these fibers, those are desirable which include 30wt.% or more, more desirably 50wt.% or more of wood fibers or plant fibers, from a standpoint of mechanical property, thermal property and the like.

Further, it is possible to include a sizing agent, fixing agent, paper strengthening agent, wet paper strengthening agent, dye, and loading material, as required.

It is also possible to apply clay court, gravure or the like.

For the above-described base paper, it is required to coat denatured polyethylene imine onto at least that surface of the base paper which is subjected to coextrusion lamination as described later.

Polyethylene imine is obtained by ring-opening polymerization of ethylene imine by using an acid catalyst, and is generally represented by the following formula 1, while the polyethylene imine is used in a denatured form to be described later:

[Formula 1]

$$\begin{array}{c} \text{H}_2\text{C} \\ \text{I} \\ \text{H}_2\text{C} \end{array} \hspace{-0.5cm} \sim \hspace{-0.5cm} \text{N-(-CH}_2\text{-CH}_2\text{-NH-)}_{\text{n}}\text{-H} \\ \end{array}$$

As an example of denaturation, it is possible to adopt denatured polyethylene imine as represented by the following formula 2:

(1) (Amendment 2)

Next, used as a barrier resin layer (b) is a barrier resin for restricting permeation of oxygen and flavor components, which possesses oxygen barrier property against oxygen susceptible to permeate, from the outside, through a paper container obtained by forming the laminate, and flavor barrier property for preventing dissipation of flavor components of the contents to the outside of the paper container.

To be used as the barrier resin is ethylene-vinyl alcohol copolymer (so-called EVOH).

Namely, EVOH is adopted as the barrier resin in the present invention, in consideration of balance between the barrier properties for restricting permeation of oxygen and flavor components and the coextrusion lamination processing suitability.

The EVOH is obtained by saponifying a copolymer of ethylene and vinyl ester, by using an alkali catalyst or the like.

Representative examples of vinyl ester include vinyl acetate, and other aliphatic vinyl esters may be used.

Ethylene contents of the EVOH are 15 to 60mol%, preferably 20 to 55mol%, and more preferably 25 to 50mol%.

(2) (Amendment 1 & 2)

Claim

1. (Amended) A laminate comprising a multi resin layer including at least three layers comprising adhesive resin layer (a)/barrier resin layer (b)/adhesive resin layer (a') coextrusion laminated onto a base paper coated with denatured polyethylene imine such that said adhesive resin layer (a) is contacted with said coated surface of said base paper, characterized in

that the denatured polyethylene imine is represented by the following formula I or formula II: and

that said barrier resin layer (b) comprises ethylenevinyl alcohol sopolymer:

formula I:
$$\hbox{-(-CH$_2$-CH_2$-$N+CH$_2$-CH_2$-$NH$-)$_n$-} \\ \hbox{$CH$_2$-CH_2$-$NH$_2}$$

formula II:

$$\begin{array}{c} R_1 \\ -(-CH_2-CH_2-N-)_m-(-CH_2-CH_2-N-)_n-(-CH_2-CH_2-N-)_p-\\ -(-CH_2-CH_2-N-)_q-\\ R_3 \end{array}$$

wherein R_1 to R_3 each represent hydrogen, an alkyl group, alkenyl group, benzyl group, or a cyclic hydrocarbon residue.

- 2. The laminate of claim 1, characterized in that said multi resin layer comprises at least four layers including a thermoplastic resin layer (c) provided outside said adhesive resin layer (a').
 - 3.
 - 4.
 - 5.
- 6. The laminate of claim 1 or 2, characterized in that said adhesive resin layer (a) and said adhesive resin

layer (a') comprise graft polymers obtained by graft polymerizing unsaturated carboxylic acid such as maleic acid or anhydride thereof, with polyolefin resin such as low-density polyethylene, straight chain low-density polyethylene, very-low-density polyethylene, or polypropylene.

- 7. The laminate of claim 1 or 2, characterized in that said adhesive resin layer (a) and said adhesive resin layer (a') comprise copolymers of olefin such as ethylene, with maleic acid, acrylic acid, methacrylic acid, vinyl acetate, acrylic acid ester, and methacrylic acid ester.
 - 8. (Deletion)
 - 9. (Deletion)
 - 10. (Deletion)
- 11. (Amended) The laminate of claim 1 or 2, characterized in that the EVOH is obtained by saponifying a copolymer of ethylene and vinyl ester, by using an alkali catalyst or the like;

that the EVOH has an ethylene content of 15 to 60mol%; and

that the vinyl ester component has a saponification degree of 90% or more.

- 12. The laminate of claim 11, characterized in that the EVOH has a melt flow rate (MFR) (based on JIS K7210 under a load of 2,160g at 210° C) of 1 to 45g/10min.
- 13. The laminate of claim 1 or 2, characterized in that said adhesive resin layer (a) has a thickness set at 1μ m or more, said barrier resin layer (b) has a thickness set at 0.5 to 30μ m, and said adhesive resin layer (a') has

a thickness set at $0.5\mu m$ or more.

- 14. The laminate of claim 2, characterized in that said thermoplastic resin layer (c) has a thickness set at $2\mu m$ or more.
- 15. The laminate of claim 2, characterized in that said thermoplastic resin layer (c) comprises low-density polyethylene, straight chain low-density polyethylene, very-low-density polyethylene or polypropylene.
- 16. The laminate of claim 15, characterized in that said thermoplastic resin layer (c) comprises a polyolefin resin having MFR in a range of 0.5 to 20g/10min.
- 17. The laminate of claim 1, 2 or 6, characterized in that said adhesive resin layer (a) is adapted to be bonded to said base paper coated with polyethylene imine, and has an MFR (under a load of 2,160g at 190°C) of 0.5 to 20g/10min.
- 18. (Amended) The laminate of any one of claims 1, 2, 6, 7, 11 through 17, characterized in that the temperature of the molten resin layer upon coextrusion lamination is set at 290°C or lower at a die outlet.
- 19. (Amended) The laminate of any one of claims 1, 2, 6, 7, 11 through 18, characterized by a heat sealing layer provided on said base paper at a position other than the coextrusion laminated surface thereof.
- 20. The laminate of claim 19, characterized in that said heat sealing layer comprises a polyolefin resin having an MFR set in a range of 0.5 to 20g/10min and a thickness

set in a range of 3 to $100\mu m$.

- 21. The laminate of any one of claims 1, 2, 6, 7, 11 through 20, characterized by a contents-contacting layer provided on the coextrusion laminated surface.
- 22. The laminate of claim 21 characterized in that said contents-contacting layer is laminated on the coextrusion laminated surface, by an extrusion laminating method.
- 23. The laminate of claim 21, characterized in that said contents-contacting layer is formed into a single layered or multi layered film, and laminated onto said coextrusion laminated multi resin layer by a sandwich laminating method.
- 24. The laminate of claim 21, characterized in that said contents-contacting layer is formed into a single layered or multi layered film, and laminated onto the coextrusion laminated surface via another resin by a sandwich laminating method.
- 25. The laminate of any one of claims 21 through 24, characterized in that said contents-contacting layer comprises a polyolefin resin or sealing polyester.
- 26. (Amended) A paper container obtained by forming said laminate of any one of claims 1, 2, 6, 7, 11 through 25.
- 27. A package comprising said paper container of claim 26 containing contents filled therein.
 - 28. The package of claim 27, wherein the contents are

soft drink.

29. (Added) The laminate of claim 18, characterized in that the temperature of the molten resin layer upon coextrusion lamination is set at 240°C to 280°C at a die outlet.

して得られるものであればよく、特に制限はない。

抄造に用いられる天然繊維としては、針葉樹パルプや広葉樹パルプなどの木材繊維、綿糸、サトウキビ、竹、麻などをパルプ化した植物繊維、羊毛、絹糸などの動物性繊維などがあげられる。

5 また、前記合成繊維としては、ポリエチレン, ポリプロピレン, ポリエステル, ポリアミド, 酢酸セルロースなどを繊維化したもの があげられる。

これらの繊維から得られた原紙の中では、機械的性質,熱的性質等の点から木材繊維又は植物繊維を30重量%以上、さらに望ましくは50重量%以上含むものが好ましい。

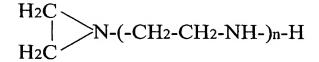
また、必要に応じてサイズ剤,定着剤,紙力増強剤,湿潤紙力剤, 染料,填料などが含有されていてもよい。

さらには、クレーコートやグラビア印刷などが施されていてもよい。

15 上記原紙については、少なくとも後述の共押し出しラミネートされる面には変性されたポリエチレンイミンをコートする必要がある。 ポリエチレンイミンは、エチレンイミンを酸触媒を用いて開環重合させたものであり、一般的には下記の式1のように表わされるが、後述の変性されたものを用いる。

20 式 1

10



例えば、変性の一例としては、下記の式2のような変性ポリエチ レンイミンを用いることが可能である。 塗工量が多すぎて逆に接着を阻害することがある。

5

15

次に、バリア性樹脂層(b)としては、積層体を成形してなる紙容器の外部から侵入する酸素に対する酸素バリア性および内容物の香味成分を紙容器外に散逸させないフレーバーバリア性を有するものであり、酸素および香味成分の透過を抑制するバリア性樹脂を用いている。

このバリア性樹脂としては、エチレン-ビニルアルコール共重合体(いわゆるEVOH)が用いられる。

即ち、この発明では、バリア性樹脂として、酸素および香味成分 10 の透過を抑制するバリア性能と共押し出しラミネート加工適性のバ ランスを考慮して、EVOHを採択した。

このEVOHは、エチレンとビニルエステルからなる共重合体をアルカリ触媒等を用いてケン化して得られる。

ビニルエステルとしては酢酸ビニルが代表的なものとしてあげられるが、その他の脂肪酸ビニルエステルも使用できる。

前記EVOHのエチレン含有量は15~60モル%であり、好適には20~55モル%、より好適には25~50モル%である。

請求の範囲

1 (補正後) 変性ポリエチレンイミンをコートした原紙に接着性 樹脂層(a) /バリア性樹脂層(b) /接着性樹脂層(a) の少 なくとも3層からなる多層樹脂層を接着性樹脂層(a) が上記コー ト面に接するように共押し出しラミネートしてなる積層体であって、 前記変性ポリエチレンイミンが、下記の式 I または式 II からなり、 前記バリア性樹脂層(b) が、エチレンービニルアルコール共重 合体からなることを特徴とする積層体。

式 I

10 式 II

5

ここで、 $R_1 \sim R_3$ は水素またはアルキル基、アルケニル基、ベンジル基、環状炭化水素残基を表す。

2 多層樹脂層が、接着性樹脂層(a')の外側に熱可塑性樹脂層(c)を設けた少なくとも4層からなることを特徴とする請求項1に記載の積層体。

3

15

4

5

6 接着性樹脂層(a) および接着性樹脂層(a) が、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン樹脂にマレイン酸などの不飽和カルボン酸やその無水物をグラフト重合させたものからなっていることを特徴とする請求項1または2に記載の積層体。

7 接着性樹脂層(a) および接着性樹脂層(a') が、エチレンなどのオレフィンとマレイン酸, アクリル酸, メタクリル酸, 酢酸ビニル, アクリル酸エステル, メタクリル酸エステルとの共重合体からなっていることを特徴とする請求項1または2に記載の積層体。

10 8 (削除)

5

15

20

- 9 (削除)
- 10(削除)
- 11 (補正後) E V O H が、エチレンとビニルエステルからなる共 重合体をアルカリ触媒等を用いてケン化して得られるもので、E V O H のエチレン含有量は15~60モル%からなっており、ビニル エステル成分のケン化度は、90%以上であることを特徴とする請 求項1または2に記載の積層体。
 - 12 EVOHのメルトフローレート (MFR) (210℃, 21
 60g荷重下, JIS K7210に基づく)が、1~45g/1
 0minであることを特徴とする請求項11に記載の積層体。
 - 13 接着性樹脂層 (a) の厚みが 1μ m以上、バリア性樹脂層 (b) の厚みが $0.5 \sim 30 \mu$ m、接着性樹脂層 (a') の厚みが 0.5μ m以上に設定されていることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の積層体。
- 25 14 熱可塑性樹脂層 (c) の厚みが 2 μ m以上に設定されていることを特徴とする請求項 2 に記載の積層体。

- 15 熱可塑性樹脂層 (c) が、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレンまたはポリプロピレンからなることを特徴とする請求項2に記載の積層体。
- 16 熱可塑性樹脂層 (c) は、ポリオレフィン樹脂のMFRが0.
- 5 20g/10minの範囲からなることを特徴とする請求項15 に記載の積層体

10

20

- 17 接着性樹脂層(a)が、ポリエチレンイミンをコートした原紙と接合するものであり、MFR(190 $^{\circ}$ 、2160g荷重)が0.5 $^{\circ}$ 20g/10minの範囲であることを特徴とする請求項1、2、または6に記載の積層体。
- 18 (補正後) 共押し出しラミネート時の溶融樹脂層のダイ出口における温度を290℃以下としたことを特徴とする請求項1、2、6、7、11~17のいずれかに記載の積層体。
- 19 (補正後) 原紙の共押し出しラミネート面以外の面にヒートシール層を設けたことを特徴とする請求項1、2、6、7、11~1 8のいずれかに記載の積層体。
 - 20 ヒートシール層がポリオレフィン樹脂からなっており、該ポリオレフィン樹脂のMFRは $0.5\sim20$ g/10 minの範囲であって、厚みが $3\sim100$ μ mの範囲に設定されていることを特徴とする請求項19 に記載の積層体。
 - 21 (補正後) 共押し出しラミネートされた面の上に内容物接触層を設けたことを特徴とする請求項1、2、6、7、11~20のいずれかに記載の積層体。
- 22 内容物接触層が、押し出しラミネート法により共押し出しラ 25 ミネートされた面に積層されたことを特徴とする請求項21に記載 の積層体。

- 23 単層または多層にフィルム化された内容物接触層を共押し出しラミネートされた多層樹脂層によりサンドイッチラミネート法により積層したことを特徴とする請求項21に記載の積層体。
- 24 単層または多層にフィルム化された内容物接触層を共押し出 しラミネートされた面に他の樹脂を介してサンドイッチラミネート 法により積層したことを特徴とする請求項21に記載の積層体。
 - 25 内容物接触層が、ポリオレフィン樹脂またはシール性ポリエステルからなっていることを特徴とする請求項21~24のいずれかに記載の積層体。
- 10 26 (補正後)請求項1、2、6、7、11~25のいずれか1項 に記載の積層体を成形してなる紙容器。
 - 27 請求項26に記載の紙容器に内容物を充填してなる包装体。
 - 28 内容物が清涼飲料である請求項27に記載の包装体。
- 29 (追加) 共押し出しラミネート時の溶融樹脂層のダイ出口にお 15 ける温度を240℃~280℃にしたことを特徴とする請求項18 に記載の積層体。